Klinikum Steglitz der Freien Universität Berlin
Klinik für Radiologie, Nuklearmedizin und Physikalische Therapie (WE 10)
(Geschäftsführender Direktor: Prof. Dr. H. Ernst)

Abteilung für Nuklearmedizin
Physik/Strahlenschutz (Biophysik)

Strahlenexposition des Patienten durch radioaktive Verunreinigungen in Technetium ^{99m}-Eluaten

Inaugural-Dissertation
zur
Erlangung der medizinischen Doktorwürde
an den Medizinischen Fachbereichen
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Hardieck, Volker
Steinhöring

1976

Referent: Prof. Dr. A. Kaul

Korreferent: Prof. Dr. U. Haubold

Gedruckt mit Genehmigung der Medizinischen Fachbereiche der
Freien Universität Berlin.

Promoviert am: 25. November 1976

Klinikum Steglitz der Freien Universität Berlin
Klinik für Radiologie, Nuklearmedizin und Physikalische Therapie (WE 10)
(Geschäftsführender Direktor: Prof. Dr. H. Ernst)

Abteilung für Nuklearmedizin
Physik/Strahlenschutz (Biophysik)

Strahlenexposition des Patienten durch radioaktive Verunreinigungen in Technetium ^{99m}-Eluaten

Inaugural-Dissertation
zur
Erlangung der medizinischen Doktorwürde
an den Medizinischen Fachbereichen
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Hardieck, Volker
Steinhöring

Referent: Prof. Dr. A. Kaul

Korreferent: Prof. Dr. U. Haubold

Gedruckt mit Genehmigung der Medizinischen Fachbereiche der
Freien Universität Berlin.

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Promoviert am: 25. November 1976

Inhaltsverzeichnis

		Seite:
1.	Einleitung	4
2.	Übersicht über bisher durchgeführte Untersuchungen	4
3.	Methodik	7
3.1	*Generator-Prinzip*	*7*
3.2	*Probengewinnung und -aufbereitung*	*7*
3.3	*Gamma-Spektrometrie*	*10*
3.3.1	Aufbau der Meßapparatur	10
3.3.2	Energie-Kalibrierung	10
3.3.3	Aktivitäts-Kalibrierung	13
3.4	*Durchführung der Messungen*	*14*
3.5	*Dosis-Berechnungen*	*16*
4.	Auswertung und Ergebnisse der Messungen	17
4.1	*Energie- und Aktivitäts-Kalibrierung*	*17*
4.2	*Eluate*	*19*
4.2.1	Identifizierung der Radionuklide	19
4.2.2	Aktivitätsbestimmung und Abhängigkeit der Aktivität von der Elutionsnummer	21
4.3	*Ermittlung der zusätzlichen Strahlenexposition durch radioaktive Verunreinigungen*	*26*
4.4	*Fehlerbetrachtung*	*30*
5.	Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse	32
6.	Literatur	34

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41548901_0027

1. Einleitung

In der nuklearmedizinischen Diagnostik ist in den letzten Jahren eine zunehmende Anwendung von radioaktiven Substanzen zu beobachten. Die hiermit verbundene Strahlenexposition des Patienten ist bei der Inkorporierung dieser radioaktiven Stoffe aufgrund der Verteilung und biologischen Elimination über den Zeitraum der Untersuchung hinaus wirksam. Die Höhe dieser Strahlenexposition wird durch die biokinetischen Daten des applizierten Radiopharmakons sowie die physikalischen Eigenschaften des Radionuklids bedingt. Unter dem Gesichtspunkt der Dosisreduktion sind solche Radionuklide auszuwählen, die sich durch eine kurze physikalische Halbwertzeit bei geringer pro Zerfall in einem Organ absorbierter Energie auszeichnen. Diese letzte Eigenschaft besitzen reine γ-Strahler, d. h. Radionuklide, die keine korpuskuläre Strahlung emittieren. Die Möglichkeit einer Dosisreduktion durch Verringerung der applizierten Aktivität ist dadurch eingeengt, daß der extrakorporale Nachweis der Strahlung noch mit hinreichender statistischer Genauigkeit geführt werden muß. Radionuklide, die unter dem Gesichtspunkt einer geringen Strahlenexposition des Patienten günstige Eigenschaften besitzen, sind solche, die aus Radionuklid-Generatoren gewonnen werden können. Die bekanntesten Generatorsysteme sind der $^{99}Mo/^{99m}Tc$-, der $^{113}Sn/^{113m}In$- und der $^{87}Y/^{87m}Sr$-Generator.

Da frühere Untersuchungen gezeigt haben, daß die aus Generator-Systemen gewonnenen Radionuklide auch langlebige radioaktive Verunreinigungen enthalten können, die bei der Applikation am Patienten eine zusätzliche Strahlenexposition bedingen, soll der in der Klinik am häufigsten angewandte $^{99}Mo/^{99m}Tc$-Generator auf solche radioaktive Verunreinigungen untersucht werden. Um quantitative Aussagen über die Höhe der zusätzlichen Strahlenexposition machen zu können, wurden die Technetiumlösungen unter den Bedingungen der klinischen Routine gewonnen und auf mögliche radioaktive Verunreinigungen untersucht.

2. Übersicht über bisher durchgeführte Untersuchungen

In der nachfolgenden Tabelle 1 sind die Ergebnisse der bislang durchgeführten Untersuchungen zusammengestellt. Sie enthält im einzelnen Angaben über das jeweils benutzte Meßsystem, d. h. die zum Nachweis der Strahlung verwendeten Detektoren sowie über den für die γ-Quanten-Energiebestimmung verwendeten Kernspeicher- bzw. Energiebereiche. Die bis 1971 durchgeführten Untersuchungen erstreckten sich über einen Energiebereich von 0—1 MeV. Zur Messung dienten hierbei NaJ-(Tl)-Kristalle. Die dabei benutzten Vielkanalimpulshöhenanalysatoren haben das Energiespektrum

Autor (Jahr)	Meßsystem			Gen. Typ	gefundene radioaktive Verunreinigungen		
	Detektor	Kern-speicher-bereich	Energie-bereich		RN	Aktivität (μCi/mCi ^{99m}Tc)	zusätzliche Dosis
SMITH (1964)	3"×3" Na J-Krist	100	0–1 MeV	Spalt.	^{99}Mo* ^{103}Ru ^{131}J	0,1540 0,0020 0,00032	
CROSBY (1969)	2"×2" Na J	400	0–1 MeV		^{99}Mo* ^{186}Re	bis zu 1,0	^{186}Re: GK: 4,5% SD: 2%
WOOD et al. (1971)	2"×2" Na J	400	0–2 MeV	Akt.	^{95}Zr ^{124}Sb		
MÜLLER et al. (1971)	Ge (Li) (20 cm^3)	2000		Akt.	^{99}Mo* ^{60}Co ^{86}Rb ^{110m}Ag ^{131}J ^{131}Ba ^{134}Cs ^{239}Np	insgesamt: <10–4% der ^{99m}Tc – Aktivität	
PODOLAK (1972)	a) 4"×4" Na J b) Ge (Li)	400 2000	0–2,5 MeV	Akt.	^{60}Co ^{134}Cs ^{86}Rb	0,01	
MEINHOLD et al. (1973)	Ge (Li) (27 cm^3)	4096	0–2 MeV		^{99}Mo* ^{110m}Ag ^{134}Cs	0,120 0,0005 0,010	^{110m}Ag: 0,7–1,5% ^{134}Cs: 53–85%
COLOMBETTI et al. (1973)	Ge (Li)		einige MeV	Spalt.	^{131}J ^{103}Ru ^{106}Ru ^{132}Te	0,0004 0,0015 $\ll 10^{-4}$ $\ll 10^{-4}$	^{131}J: GK: 0,7 μrd; SD: 0,84 mrd ^{103}Ru: GK: 1,7 μrd ^{106}Ru: GK: 0,03 mrd ^{132}Te: vernachlässigbar
BOYD (1973)	Ge (Li)	512		Spalt.	^{99}Mo* ^{140}La ^{132}J ^{131}J ^{103}Ru ^{90}Sr α–Akt.	0,007 0,0002 0,015 0,0005 0,0001 < 1 pCi/mCi ^{99m}Tc 0,0001	insgesamt < 1% des applizierten 99 m Tc
				Akt.	^{99}Mo ^{131}J	0,0001	
CONSTANT et al. (1973)	Ge (Li)	4000		Akt.	^{134}Cs ^{86}Rb* ^{187}W*	^{134}Cs von Elution zu Elution kleiner	
					^{131}J ^{103}Ru ^{155}Eu ^{239}Pu ^{241}Am		
HERZBERG et al. (1974)	GE (Li) (27 cm^3)	4096	0–2 MeV		^{99}Mo* ^{134}Cs ^{110m}Ag ^{86}Rb ^{89}Zr	1,325 0,036 0,0004 0,006 0,030	^{99}Mo: –70% ^{134}Cs: 5–20% ^{110m}Ag, ^{86}Rb, ^{89}Zr: < 1%
SORANTIN et al. (1974)	a) Ge (Li) (40,7 cm^3)	4096	0–1,6 MeV	Akt.	^{134}Cs ^{99}Mo ^{124}Sb	0,127 μCi/5 ml 0,078 μCi/5 ml	je nach Organ: (mrd/5ml) ^{134}Cs: 26–171 · 10^{-3} ^{131}J: 60–254 · 10^{-3} ^{103}Ru: 0,6–1,6 · 10^{-3}
	b) Ge (Li) (40,7 cm^3)	4096	0–1,6 MeV	Spalt.	^{131}J ^{103}Ru	2,140 μCi/5 ml 0,017 μCi/5 ml	
BRINER et al. (1974)	3"×3" Na J	200	0–1,6 MeV	Spalt.	^{99}Mo* ^{132}J ^{92}Nb	< 0,01% Tc 99 m	
					*nur in einigen Eluaten beobachtet		

Tab. 1 Übersicht über bisher durchgeführte Untersuchungen

auf 100 bzw. 200 Kanälen aufgenommen. Ein Charakteristikum für die Güte eines solchen Szintillationszählers ist das Energieauflösungsvermögen, das bei den handelsüblichen NaJ-Detektoren bei 8–10 % liegt – bezogen auf die 662 keV-Linie des ^{137}Cs. Daraus resultiert, daß Peaks im Enegiespektrum nur dann nebeneinander nachgewiesen werden können, wenn sich ihre Energie mindestens um 60 keV von einander unterscheiden. In den späteren Untersuchungen wurden Energiebereiche von 0–2 MeV und mehr gemessen. Dabei werden bevorzugt Festkörper-Detektoren (Lithium gedriftete Germanium-Detektoren) verwendet, die sich durch ein wesentlich höheres Energieauflösungsvermögen (<< als 1 %) auszeichnen: Bezogen auf die 1,332 MeV-Linie des ^{60}Co entspricht dies einem Auflösungsvermögen von 4 keV. Demzufolge mußten Vielkanalanalysatoren verwendet werden, die über einen Kernspeicherbereich von wenigstens 2048 Kanälen verfügen.

Da bekanntermaßen der Herstellungsprozeß des Mutternuklids ^{99}Mo nach zwei unterschiedlichen Verfahren erfolgen kann, sind diese in der Tabelle aufgeführt. Man unterscheidet Spaltgeneratoren, bei denen das ^{99}Mo durch radiochemische Abtrennung von Spaltprodukten gewonnen wird, und Aktivierungsgeneratoren, bei welchen das ^{99}Mo durch Bestrahlung von ^{98}Mo hergestellt wird.

In einer weiteren Spalte werden die gefundenen radioaktiven Verunreinigungen und ihre Aktivitäten (bezogen auf 1m Ci ^{99m}Tc) und – sofern durchgeführt – Ergebnisse von Dosisberechnungen angegeben. Hierbei wurden von der Mehrzahl der Untersucher Aktivitäten der Verunreinigungen zwar angegeben, Hinweise auf die laufende Nummer der untersuchten Elutionen seit Inbetriebnahme des Generators sind im allgemeinen den Veröffentlichungen nicht zu entnehmen. Außerdem ist teilweise nicht ersichtlich, ob die radioaktiven Verunreinigungen nur in den Säulen oder auch in den Technetium-Eluaten beobachtet wurden.

Vereinzelt wird in den bisher publizierten Arbeiten die aus den radioaktiven Verunreinigungen zusätzlich resultierende Strahlenexposition des Patienten angegeben. Sofern überhaupt Dosisangaben aus Publikationen vor 1972 verfügbar sind, ist aus den mitgeteilten Werten nicht zu entnehmen, welche Dosiskonzepte – man unterscheidet zwischen dem Konzept des effektiven Absorptionskoeffizienten, des effektiven Radius und des sogenannten absorbierten Bruchteils (KAUL et al (1974)) – den Berechnungen zugrunde liegen und welche biokinetischen Daten für die einzelnen Radionuklide benutzt wurden.

Da wegen der Strahlenexposition des Patienten den langlebigen Verunreinigungen in den Tc-Eluaten eine besondere Bedeutung zukommt, sind die in den bisherigen Untersuchungen gefundenen eluierbaren radioaktiven Verunreinigungen in der Tabelle

2 zusammengestellt. Im wesentlichen konnten folgende radioaktive Verunreinigungen neben vereinzelten Mo-Durchbrüchen beobachtet werden:

^{134}Cs, ^{60}Co, ^{86}Rb, ^{95}Zr, ^{103}Ru, ^{110m}Ag, ^{124}Sb, ^{131}Ba, ^{131}J, ^{132}J, ^{186}Re, ^{239}Np, ^{92}Nb, ^{106}Ru, ^{132}Te, ^{89}Zr, ^{90}Sr, ^{140}La, ^{187}W, ^{155}Eu, ^{239}Pu, ^{241}Am

3. Methodik

3.1 Generatorprinzip

Das Prinzip eines $^{99}Mo/^{99m}Tc$-Generatorsystems (z. B. RÖMER et al (1970)) beruht darauf, daß das langlebige Mutternuklid ^{99}Mo (Halbwertzeit 67 Std.) in die kurzlebige Tochtersubstanz ^{99m}Tc (Halbwertzeit 6 Std.) zerfällt. Durch Abtrennung (Elution) wird das Tochternuklid gewonnen. Nach vollständiger Elution dieser Tochter wird nach 23 Stunden der Zustand des idealen radioaktiven Gleichgewichts zwischen ^{99}Mo und ^{99m}Tc erreicht. Zu diesem Zeitpunkt ist die nach einem Elutionsvorgang maximal erreichbare ^{99m}Tc-Aktivität im Generator verfügbar. Die Kinetik des ^{99m}Tc ist in Abb. 1 unter der Voraussetzung jeweils vollständiger Elution in 23 Std.-Intervallen dargestellt.

3.2 Probengewinnung und -aufbereitung

Die vorliegenden Untersuchungen wurden an drei $^{99}Mo/^{99m}Tc$-Generatoren eines Herstellers (der Firma NEN) mit einer Mo-Aktivität von 200mCi zum Zeitpunkt der Inbetriebnahme unter den Bedingungen der klinischen Routine auf radioaktive Verunreinigungen durchgeführt, wobei der Elutionsvorgang sowie die Probenaufbereitung wie folgt geschah:

a) grundsätzlich wurden die Generatoren arbeitstäglich im 24-Std.-Rhythmus mit 20 ml physiologischer-NaCl-Lösung während eines Zeitraumes von 3 Minuten eluiert;

b) pro Generator bzw. Elutionsperiode erfolgten 10 Elutionen, so daß sich bei 3 benutzten Generatoren ein Gesamtuntersuchungszeitraum von 6 Wochen ergab;

c) für die Untersuchungen wurde ein Aliquot des Eluats von 1 ml unmittel-

Autor	^{60}Co	^{86}Rb	^{89}Zr	^{90}Sr	^{92}Nb	^{95}Zr	^{99}Mo	^{103}Ru	^{106}Ru	^{110m}Ag	^{124}Sb	^{131}Ba	^{131}J	^{132}J	^{132}Te	^{134}Cs	^{140}La	^{155}Eu	^{186}Re	^{187}W	^{239}Np	^{239}Pu	^{241}Am
SMITH (1964)							+	+					+										
CROSBY (1969)							+												+				
WOOD et al (1971)						+					+												
MÜLLER et al (1971)	+	+					+			+		+	+			+					+		
PODOLAK (1972)	+	+														+							
MEINHOLD et al (1973)							+			+						+							
BOYD (1973)				+			+	+					+	+			+						
CONSTANT et al (1973)		+						+					+			+		+			+	+	+
COLOMBETTI et al (1973)								+	+				+		+								
HERZBERG et al (1974)		+	+				+			+						+							
SORANTIN et al (1974)							+	+			+		+			+							
BRINER et al (1974)						+									+								

Tab. 2: Zusammenstellung der in ^{99m}Tc-Eluaten gefundenen radioaktiven Verunreinigungen

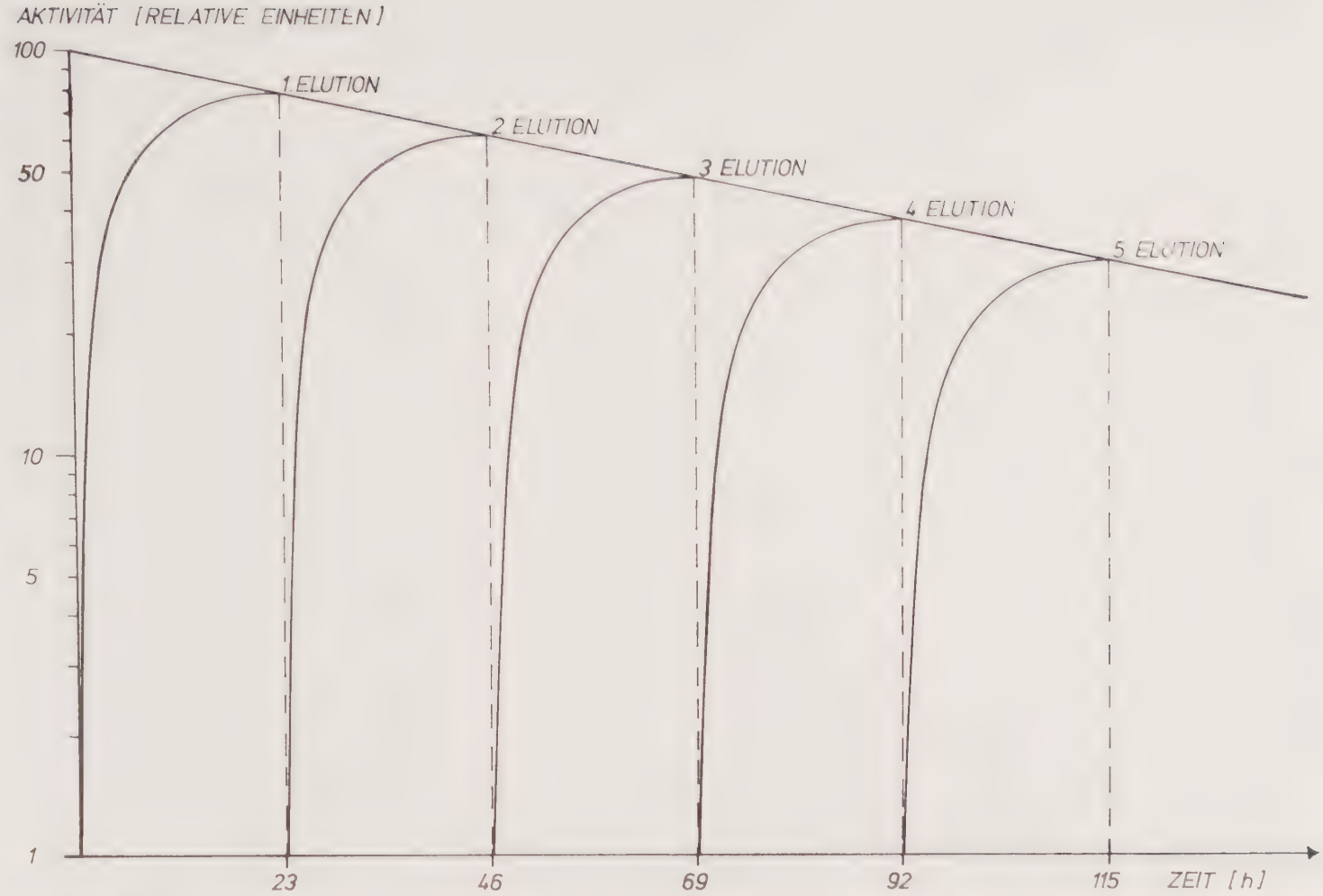

ABB. 1 ^{99m}Tc - AKTIVITÄT ALS FUNKTION DER ZEIT NACH ELUTION WÄHREND EINER ELUTIONSPERIODE MIT 23 STD. ELUTIONSINTERVALLEN

bar im Anschluß an die Elution in ein Meß-Reagenzglas überführt.

3.3 Gamma-Spektrometrie

3.3.1 Aufbau der Meßapparatur

Der schematische Aufbau der Meßanordnung ist in Abbildung 2 dargestellt. Als Detektor diente ein Ge(Li)-Halbleiter mit einem aktiven Volumen von 81 cm^3, einem Durchmesser von 48,5 mm, einer Länge von 60 mm und einer senkrecht zur Zylinderachse verlaufenden durchgehenden Bohrung mit einem Durchmesser von 16 mm zur Aufnahme der Probenröhrchen. Der gekühlte Detektor, der über einen Kühlfinger (Kupfer-Rohr) an einem Kryostaten angeschlossen ist (Kühlflüssigkeit ist flüssiger Stickstoff), und der ladungsempfindliche Vorverstärker befinden sich in einer allseitig umschlossenen 5 cm dicken Bleiabschirmung. Diese dient der Verringerung der im wesentlichen von ^{40}K und Radium- bzw. Thorium-Folgeprodukten herrührenden Umgebungsaktivität. Die vom Vorverstärker gelieferten elektrischen Signale werden über einen Linear-Verstärker dem Analog-Digital-Wandler (ADC) des Vielkanalanalysators (LABEN Mod. 4096) zugeführt. Zur Datenausgabe sind mit dem Kernspeicher des Vielkanalanalysators ein Oszilloskop, ein Fernschreiber (TTY), ein x, y-Schreiber und ein Lochstreifenstanzer verbunden. Zur Eingabe der auf Lochstreifen ausgegebenen Impulshöhenspektren dient ein mit dem Kernspeicher des Vielkanalanaysators verbundener Lochstreifenleser. Die zur Versorgung des Ge(Li)-Detektors notwendige Hochspannung beträgt 1800 Volt. Zur Überprüfung der Energiekalibrierung des Meßsystems dienen die elektrischen Signale eines Präzisions-Pulsgenerators, der mit dem Vorverstärker verbunden ist.

3.3.2 Energiekalibrierung

Zur Bestimmung der Energie der möglichen radioaktiven Verunreinigungen ist eine Energiekalibrierung des Meßsystems notwendig. Dies geschieht mit Hilfe von Radionukliden, die nur wenig komplexe Energiespektren aufweisen. Aufgrund von Ergebnissen früherer Untersuchungen, wonach Energielinien in einem Energiebereich von 0 bis zu 2 MeV zu erwarten sind, wurde für die Energiekalibrierung des Spektrometersystems dieser Bereich vorgesehen und auf einen Kernspeicherbereich von 1024 Kanälen verteilt. Für die Energiekalibrierung wurden folgende Radionuklide benutzt: ^{57}Co, ^{99m}Tc, ^{131}J, ^{198}Au, ^{22}Na, ^{137}Cs, ^{54}Mn, ^{59}Fe und ^{60}Co. Zur Ermittlung der Energiekalibrierung wurden die in den Impulshöhenspektren auftretenden Maxima zugehörigen Kanälen zugeordnet und als Funktion der Quantenenergie graphisch dargestellt (siehe Abb. 3).

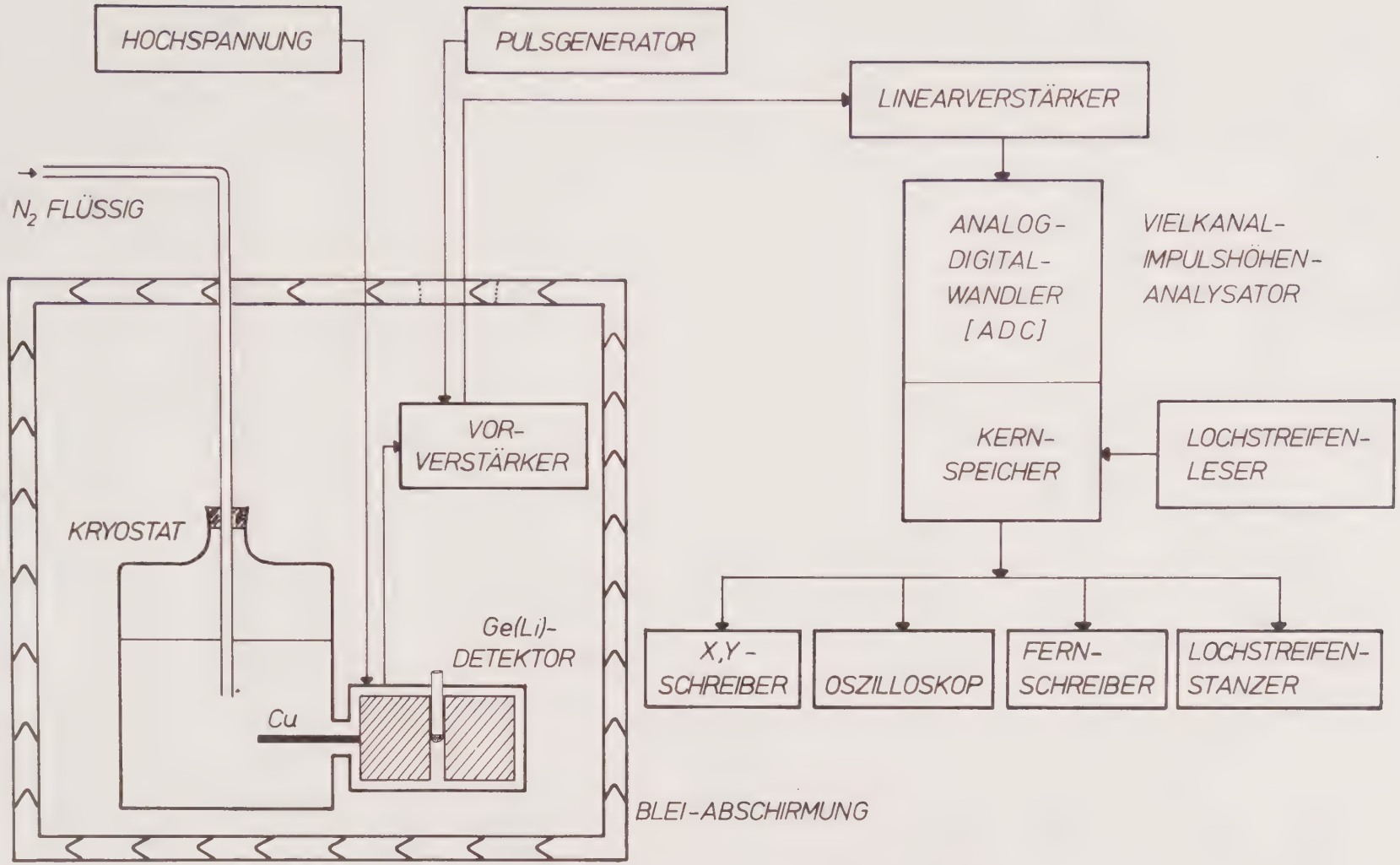

ABB.2 SCHEMATISCHER AUFBAU DER MESSANORDNUNG

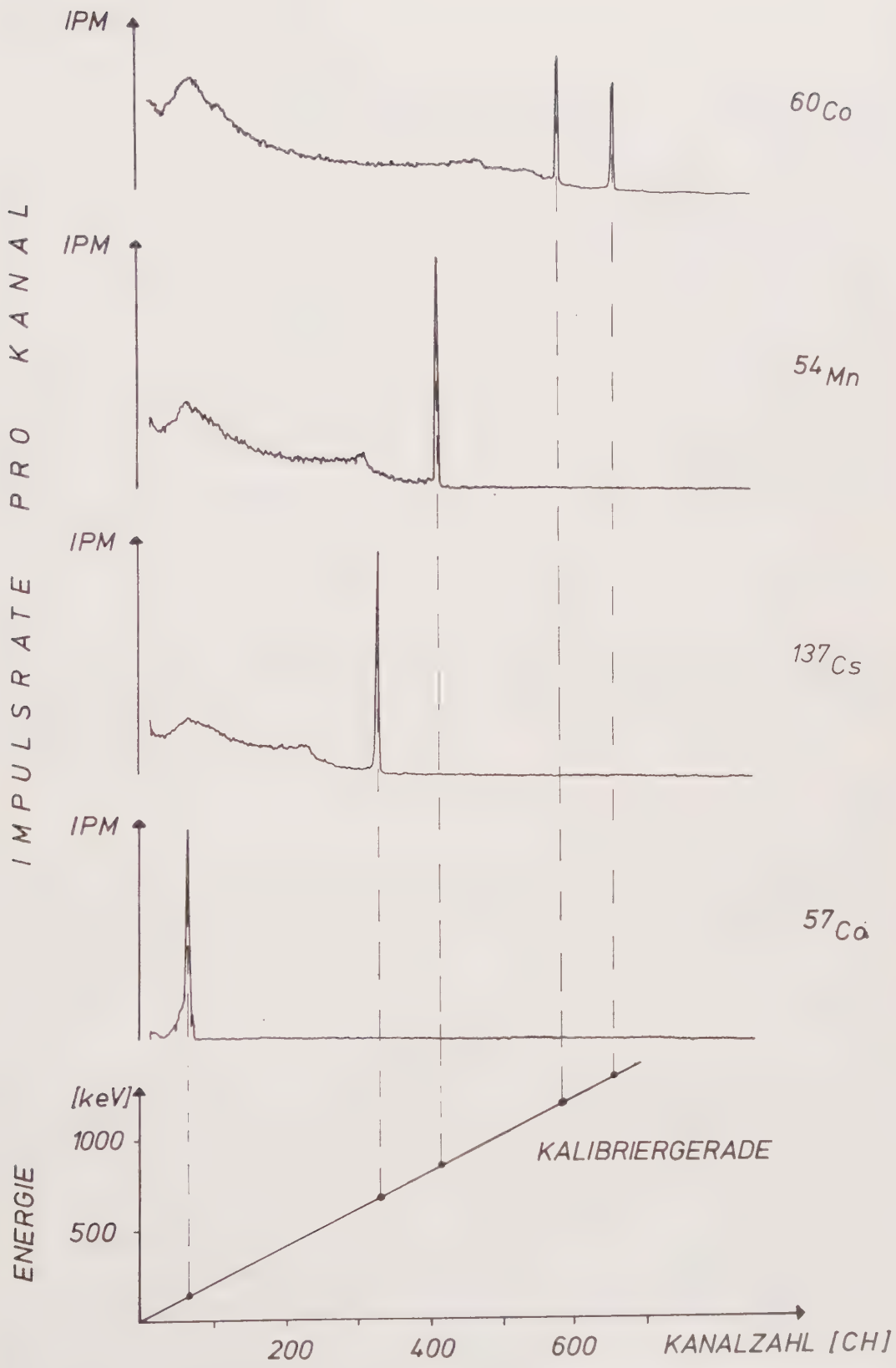

ABB. 3 ENERGIEKALIBRIERUNG (SCHEMATISCHE DARSTELLUNG)

3.3.3 Aktivitätskalibrierung

Um außer der Art einer radioaktiven Verunreinigung auch deren Aktivität bestimmen zu können, ist es erforderlich, neben der Energiekalibrierung eine Aktivitätskalibrierung durchzuführen. Die Aktivitätsbestimmung erfolgt durch Messung der Impulsrate im Photopeak des Energiespektrums, wobei die Wahl des Energiebereichs so erfolgt, daß bei elektronisch bedingter Drift der Verstärkung eine vernachläßigbare Änderung der Impulsrate auftritt. Ist die Art der radioaktiven Verunreinigung bekannt, kann die Aktivität eines Eluats durch Vergleich mit der Impulsrate eines Standards vom gleichen Radionuklid ermittelt werden. Ist für das Radionuklid keine Aktivitätsbestimmung durch Vergleich mit einem Standardnuklid möglich, kann dessen Aktivität nur aus dem für das Meßsystem zu bestimmenden Ansprechvermögen $\varepsilon(E_\gamma)$ unter Berücksichtigung der Übergangswahrscheinlichkeiten η für die einzelnen γ-Quantenenergien E_γ des Radionuklids und der Impulsrate Z (Ipm) im Energiebereich um den Photopeak ermittelt werden:

$$A\,[\mu Ci] = \frac{Z}{\varepsilon(E_\gamma)} \cdot \frac{1}{\eta} \cdot \frac{1}{2\,22} \qquad (1)$$

Bei energetisch nicht auflösbaren Photopeaks ist η durch eine „effektive" Übergangswahrscheinlichkeit η_{eff} als Summe der Einzelübergangswahrscheinlichkeiten η_i zu ersetzen:

$$\eta_{eff} = \sum_i \eta_i \qquad (2)$$

Als Detektor-Ansprechvermögen für γ-Quanten ist das Verhältnis der pro Zeiteinheit registrierten Quanten zu der Zahl der im gleichen Zeitintervall emittierten Quanten als Funktion der Energie definiert:

$$\varepsilon(E_\gamma) = \frac{\text{Impulsrate}}{\gamma\text{-Quantenrate}} \qquad (3)$$

Die für die Bestimmung der γ-Quantenrate notwendigen Werte von η werden dem Zerfallsschema des jeweiligen Radionuklids entnommen (ERDTMANN et al (1973)). Da der Energie-Absorptionskoeffizient für den Photoeffekt umgekehrt proportional der Quantenenergie ist ($\mu_p \sim \frac{1}{E_\gamma^n}$; $n \sim 1$ für $E_\gamma < 0{,}5$ MeV; $n \sim 3{,}5$ für $E_\gamma > 0{,}5$ MeV) und damit das Ansprechvermögen des Detektors mit wachsender Energie abnimmt, wurde $\varepsilon(E_\gamma)$ mit Hilfe von Standardnukliden im Energiebereich von 0–2 MeV bestimmt. Hierzu wurden folgende Radionuklide verwendet: ^{57}Co, ^{54}Mn, ^{137}Cs, ^{60}Co und ^{203}Hg. Sie waren als Eichlösungen verfügbar, deren Aktivitätsangaben mit einem mittleren Fehler von $\pm$ 1,1 % behaftet waren.

Aktivitätskalibrierung und die Probenanalyse müssen unter konstanten geometrischen Meßbedingungen erfolgen. Dies wurde dadurch erreicht, daß die Meßbedingungen (Probenröhrchen, Proben-Volumina und Probenpositionierung) konstant gehalten wurden. Als Probenröhrchen wurden Plastik-Reagenzgläser von 15,5 mm Außendurchmesser und 14 mm Innendurchmesser mit rundem Boden verwendet. Das Probenvolumen betrug einheitlich 1 ml. Um die optimale Positionierung der Proben im Bohrloch zu ermitteln, wurde für eine mittlere Energie (^{137}Cs mit 662 keV) die Zählrate als Funktion der Meßposition der Probe im Bohrlochdetektor aufgenommen und als relative Zählrate (%) graphisch dargestellt (siehe Abb. 4). Alle nachfolgenden Messungen wurden in einer Positionierung durchgeführt, bei der für das Testnuklid das maximale relative Ansprechvermögen 100 % betrug. Das relative Ansprechvermögen ε_{rel} (%) ist hierbei wie folgt definiert:

$$\varepsilon_{rel}\,(\%) = \frac{\varepsilon x}{\varepsilon_{max}} \cdot 100 \qquad (4)$$

Aus dem Verlauf des relativen Ansprechvermögen als Funktion der Positionierung der Probe ist abzuleiten, daß eine maximale Änderung von ε_{rel} von ± 5 % nur dann auftritt, wenn die Positionierung der Probe im Bohrloch um ± 10 mm vom Sollwert abweicht.

3.4 Durchführung der Messungen

Zur Vermeidung von Totzeitverlusten im benutzten Meßsystem (Detektor und Meßelektronik) wurde mit der Messung der Probe erst begonnen, nachdem die Technetium-Aktivität unter 1 μCi abgeklungen war, d. h. die erste γ-spektrometrische Messung erfolgte frühestens 40–60 Stunden nach Elution des Generators. Jede Probe wurde über einen Zeitraum von 2000 sec gemessen, nachdem sich in Vorversuchen gezeigt hatte, daß die Zählrate für die Aktivitätsbestimmung der radioaktiven Verunreinigungen innerhalb dieser Meßzeit mit einem statistischen Fehler $< \pm$ 10 % bestimmt werden konnte. Da im allgemeinen zur Radionuklididentifizierung auch die Kenntnis der Halbwertzeit notwendig ist, wurde die Probe in der Folgezeit mehrmals gemessen.

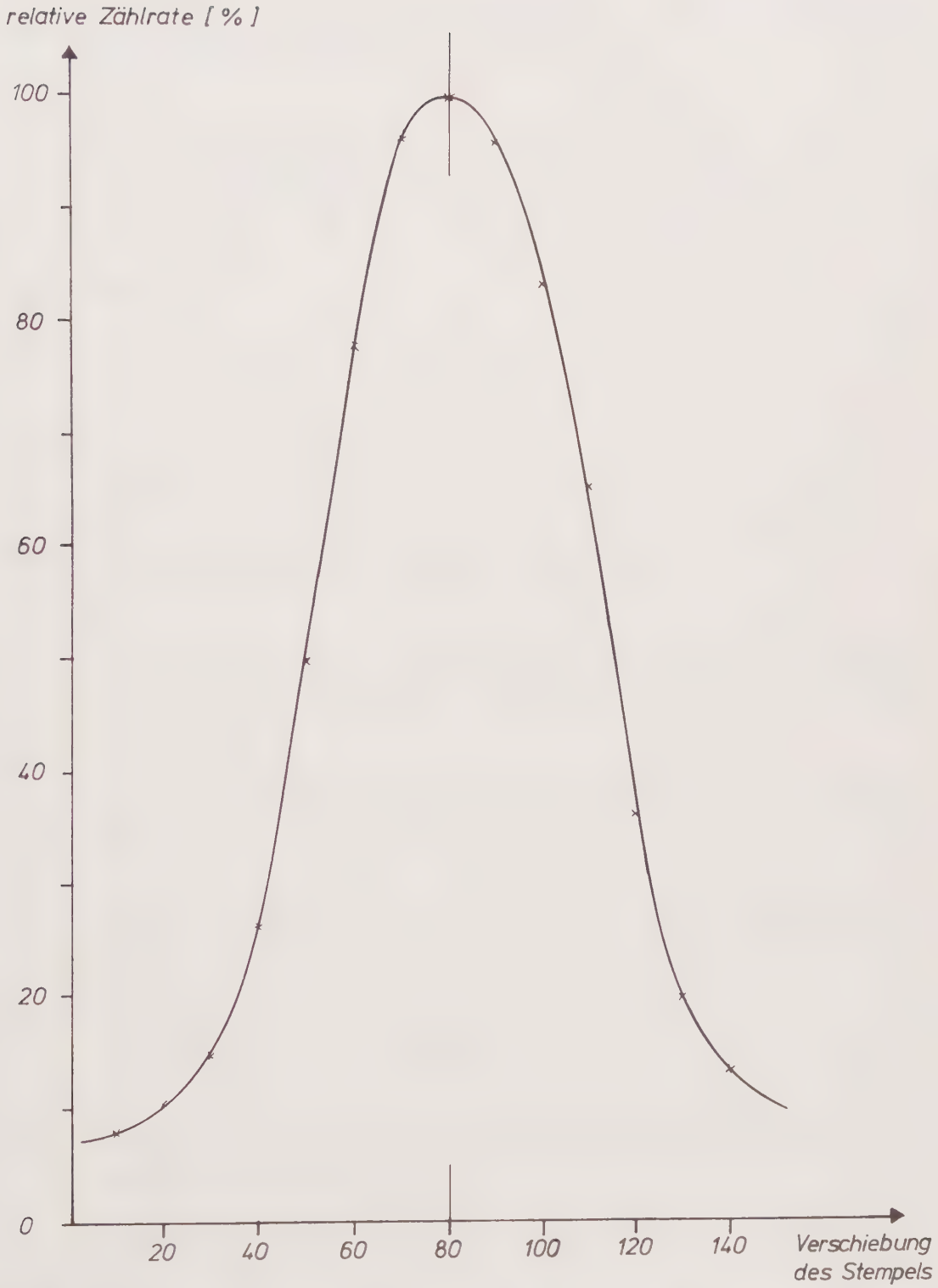

ABB. 4 ABHÄNGIGKEIT DER RELATIVEN ZÄHLRATE VON DER PROBENPOSITION IM Ge(Li)-BOHRLOCH-DETEKTOR

3.5 Dosis-Berechnungen

Die Dosisberechnungen wurden nach dem erweiterten Konzept des absorbierten Bruchteils durchgeführt. Der formale Ausdruck für die Organdosis lautet (ROEDLER et al (1971); ROEDLER (1974)):

$$D_\tau = \frac{A_o}{m_\tau \ln 2}\left[\sum_{\sigma,\nu} F_\sigma Q_{\sigma,\nu} T_{\sigma,\nu} \sum_i \Delta_i \varphi_{(\tau\leftarrow\sigma),i} + \left(\sum_\nu Q_{GK,\nu} T_{GK,\nu} - \sum_{\sigma,\nu} F_\sigma Q_{\sigma,\nu} T_{\sigma,\nu}\right) \cdot \sum_i \Delta_i \underbrace{\left(\frac{m_{GK}}{m_{RK}} \varphi_{(\tau\leftarrow GK),i} - \sum_\sigma \frac{m_\sigma}{m_{RK}} \varphi_{(\tau\leftarrow\sigma),i}\right)}_{\varphi_{(\tau\leftarrow RK),i}}\right] \tag{5}$$

Dabei bedeuten:

D_τ Energiedosis,
(D_τ) = rd

A_o applizierte Radioaktivität, (A_o) = μCi

$m_\sigma\, m_\tau$ } Massen von source-(σ), target-Organ (τ),
$m_{GK}\, m_{RK}$ } Gesamtkörper (GK) bzw. Restkörper (RK), (m) = g

F_σ Verteilungsfaktor, d. h. Bruchteil der dem Gesamtkörper zugeführten Aktivität in einem source-Organ, extrapoliert auf den Zeitpunkt der Radionuklidapplikation

$T_{\sigma,\nu}$ effektive Halbwertzeit der ν-ten Komponente der Retentionsfunktion des Organs σ

$Q_{\sigma,\nu}$ Anteil der ν-ten Komponente der Retentionsfunktion des Organs σ an dieser Retentionsfunktion; $-1 \leq Q_{\sigma,\nu} \leq +1$

Δ_i mittlere pro μCih emittierte Energie der Strahlungsart i
$\Delta_i = 2{,}13\, n_i E_i$ (Δ_i) = g rd/μCih

n_i Zahl der Photonen oder geladenen Teilchen der Strahlungsart $_i$, die pro Zerfall emittiert werden

E_i mittlere Energie eines Photons oder geladenen Teilchens; (E_i) = MeV

T_{GK} effektive Halbwertzeit des Gesamtkörpers; (T) = h

$\varphi_{(\tau\leftarrow\sigma),i}$ } Bruchteil der von einem source-Organ σ , vom Gesamtkörper GK bzw.
$\varphi_{(\tau\leftarrow GK),i}$ } vom Restkörper RK emittierten Energie der Strahlungsart $_i$, der in einem
$\varphi_{(\tau\leftarrow RK),i}$ } target-Organ τ absorbiert wird

Der mit einer geschweiften Klammer gekennzeichnete Term läßt sich deuten als absorbierter Bruchteil φ ($\tau \leftarrow$ RK)$_i$ vom Restkörper auf das target für eine bestimmte Strahlungsart $_i$ der Energie E_i, d. h. diese absorbierten Bruchteile sind eine Funktion der absorbierten Bruchteile von Gesamtkörper und sources auf das target, gewichtet mit den Massenverhältnissen von Gesamtkörper und sources zu Restkörper.

In dieser Gleichung sind die biologischen Daten F_σ, $Q_{\sigma,\nu}$ und $T_{\sigma,\nu}$ den Ergebnissen von Retentionsuntersuchungen in Form von sogenannten biokinetischen Daten zu entnehmen.

4. Auswertung und Ergebnisse der Messungen

4.1 Energie- und Aktivitätskalibrierung

Aus den Impulshöhenspektren der zur Energiekalibrierung benutzten Radionuklide ergaben sich die in der folgenden Tabelle 3 zusammengefaßten Werte der den Maxima der Photopeaks zugeordneten Kanalzahlen:

Radionuklid	Energie	Kanalzahl
RN	E (keV)	CH
^{57}Co	122,1	62
^{99m}Tc	140	72
^{131}J	364,5	184,4
^{198}Au	411,8	208
^{22}Na	511	258
^{137}Cs	661,6	333,2
^{54}Mn	834,8	420
^{59}Fe	1099,3	553
^{60}Co	1173,1	590
^{22}Na	1274	640
^{59}Fe	1291,6	649
^{60}Co	1332,4	669

Tab. 3: Meßwerte der Energie-Kalibrierung

Mit der Methode der kleinsten Fehlerquadrate wurde die Ausgleichsgerade der Energiekalibrierung rechnerisch ermittelt:

$$E\ (keV) = 1{,}99 \cdot CH - 0{,}63 \tag{6}$$

Mit dieser Gleichung lassen sich über die Kanalzahl (CH) der Maxima der Peaks in den Impulshöhenspektren der untersuchten Eluate die Quantenenergien der radioaktiven Verunreinigungen bestimmen.

Um bei der Aktivitätsbestimmung über die Impulsraten im Energiebereich um den Photopeak eine willkürliche Festlegung dieser Bereiche zu vermeiden, werden diese mit der Energie $(\Delta E)_{E_\gamma}$ der Halbwertbreite im Photopeak korreliert. Bei Normierung auf die Energie der Halbwertbreite $(\Delta E)_{662}$ für ^{137}Cs gilt dann:

$$F_\gamma = F_{662} \cdot \frac{(\Delta E)_{E_\gamma}}{(\Delta E)_{662}} \tag{7}$$

wenn F_{662}: Energiebereich zur Aktivitätsbestimmung für $E_\gamma = 662$ keV und F_γ: Energiebereich zur Aktivitätsbestimmung für $E_\gamma \leqq 662$ keV.

Es gilt außerdem:

$$F_{662} = n_{662} \cdot \Delta E_{EK} \tag{8 a}$$

und

$$F_\gamma = n_\gamma \cdot \Delta E_{EK} \tag{8 b}$$

(n_{662} und n_γ sind Kanalzahlen im Energiebereich um 662 keV bzw. um Photopeaks $E_\gamma \gtrsim 662$ keV, ΔE_{EK} (= 1,99 keV/Kanal) ist die Kanalbreite, d. h. Anstieg der Energiekalibriergeraden).

Für Festkörperdetektoren gilt für das Energieauflösungsvermögen $\Delta E/E$ näherungsweise

$$\Delta E/E = a + b \cdot 1/E \tag{9}$$

Zur Ermittlung der Parameter dieser Geradengleichung wurden die in folgender Tabelle 4 zusammengefaßten Meßwerte aus der Energiekalibrierung benutzt.

Radionuklid	Energie E_γ (keV)	Halbwertbreite im Photopeak $(\Delta E)_{E_\gamma}$ (keV)	$(\Delta E)_{E_\gamma}/E_\gamma$
^{57}Co	122,1	5,57	$4,51 \cdot 10^{-3}$
^{99m}Tc	140	6,37	$4,50 \cdot 10^{-3}$
^{131}J	364,5	5,17	$1,41 \cdot 10^{-3}$
^{198}Au	411,8	5,17	$1,25 \cdot 10^{-3}$
^{22}Na	511	5,97	$1,16 \cdot 10^{-3}$
^{137}Cs	661,6	5,17	$0,78 \cdot 10^{-3}$
^{54}Mn	834,8	5,37	$0,64 \cdot 10^{-3}$
^{59}Fe	1099,3	5,57	$0,51 \cdot 10^{-3}$
^{60}Co	1173,1	5,97	$0,51 \cdot 10^{-3}$
^{22}Na	1274	5,57	$0,44 \cdot 10^{-3}$
^{59}Fe	1291,6	5,57	$0,44 \cdot 10^{-3}$
^{60}Co	1332,4	5,77	$0,43 \cdot 10^{-3}$

Tab. 4: Halbwertbreite und Energieauflösungsvermögen des Ge(Li)-Bohrloch-Detektors im Energiebereich zwischen 122 und 1332 keV.

Die Auswertung nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate ergab:

$$(\Delta E)_{E_\gamma}/E_\gamma = 0{,}00074 + 0{,}59827 \cdot 1/E_\gamma \qquad (10)$$

Damit sind über die Gleichungen (7) und (8 a, 8 b) die Bereiche n_γ zu bestimmen, wenn unter den im Kapitel 3.3.3 genannten Kriterien $n_{662} = 10$ Kanäle gesetzt wird. Damit läßt sich das Ansprechvermögen $\varepsilon(E_\gamma)$ aus den gemessenen Zählraten bei Verwendung von Radionukliden bekannter Aktivität unter Berücksichtigung der jeweiligen Übergangswahrscheinlichkeiten für die einzelnen γ-Quanten-Energien ermitteln (siehe Gleichung 3). In der Abbildung 5 ist das Ansprechvermögen über der Energie graphisch dargestellt.

4.2 Eluate

4.2.1 Identifizierung der Radionuklide

Die Auswertung der Impulshöhenspektren der gemessenen Eluate ergab Peaks bei

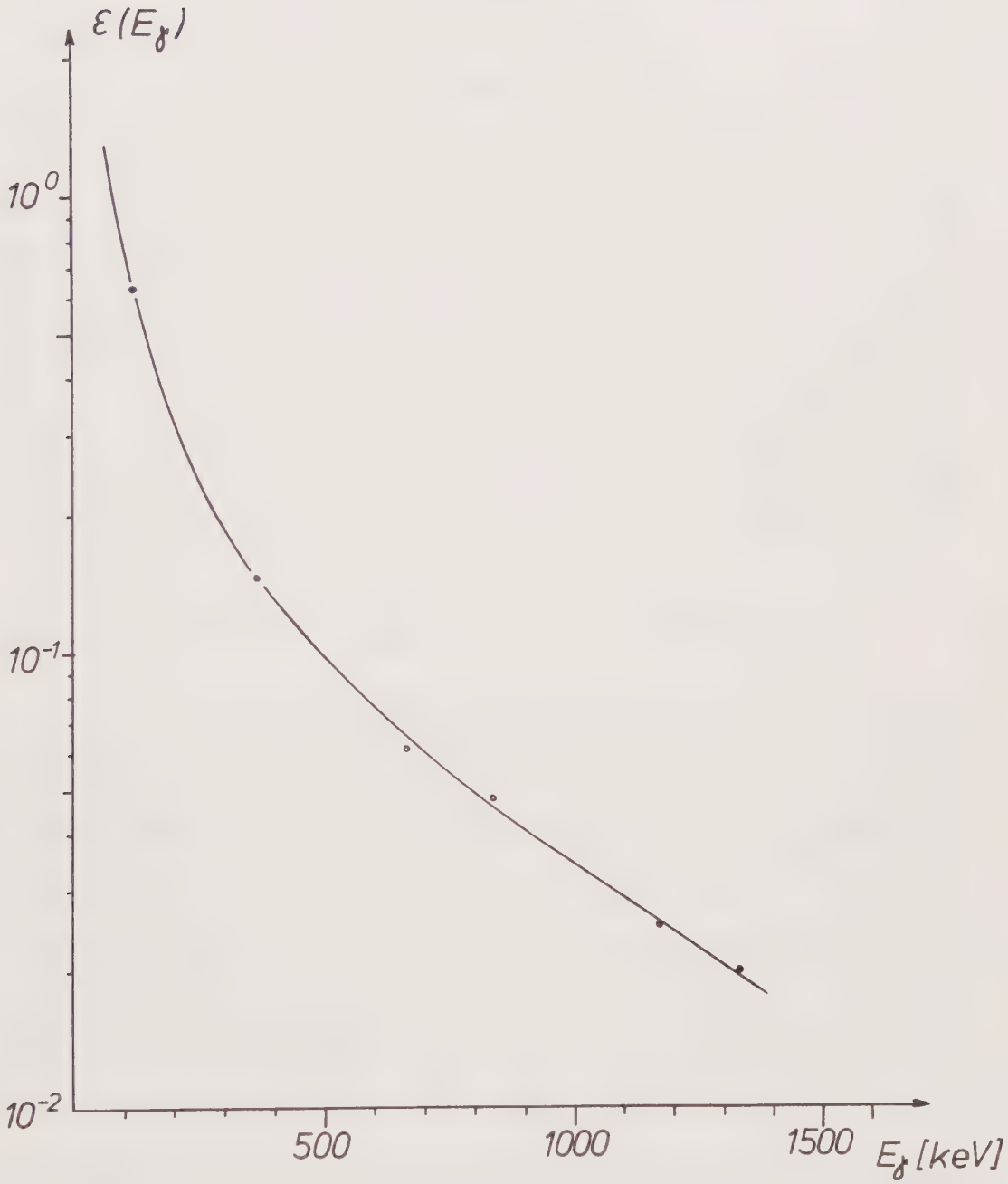

ABB. 5 ANSPRECHVERMÖGEN DES Ge(Li)-DETEKTORS

folgenden Energien: 569 keV, 605 keV, 796 keV, 1173 keV und 1332 keV. Zur Veranschaulichung diene hierzu die Abbildung 6. Die Mehrfachmessungen der Eluate zur Ermittlung der Halbwertzeit der radioaktiven Verunreinigungen ergab, daß die im Bereich der Photopeaks ermittelten Zählraten während des Untersuchungszeitraumes von 20 Tagen innerhalb der statistischen Genauigkeit konstant blieben. Die Halbwertzeiten der den Peaks im Energiespektrum zuzuordnenden Radionuklide müssen daher erheblich größer als 20 Tage sein, so daß mit Hilfe der oben angegebenen Quanten-Energien als radioaktive Verunreinigungen in den Eluaten ^{134}Cs (Quanten-Energien bei 569, 605 und 796 keV) und ^{60}Co (Quanten-Energien bei 1173 und 1332 keV) identifiziert werden konnten. Im übrigen konnte bei keinem der untersuchten Eluate ein ^{99}Mo-Durchbruch beobachtet werden. Die Bestimmung der Aktivität der gefundenen radioaktiven Verunreinigungen wurde über die Zählraten im Energiebereich um den Photopeak bestimmt. Die Wahl des Energiebereichs erfolgte unter Berücksichtigung des Energieauflösungsvermögens des Detektor-Systems wie in 4.1 beschrieben. Die Aktivitäten der einzelnen untersuchten Eluate insbesondere ihre Abhängigkeit von der Elutionsnummer werden im folgenden zusammengestellt.

4.2.2 Aktivitätsbestimmung und Abhängigkeit der Aktivität von der Elutionsnummer

Für die radioaktiven Verunreinigungen ^{134}Cs und ^{60}Co sind die pro Elution im entsprechenden Elutionsvolumen (20 ml) bestimmten Aktivitäten als Mittelwerte aus mindestens 2 zeitlich von einander getrennten Aktivitätsbestimmungen in jeweils 2 unterschiedlichen Energiebereichen in Tabelle 5 für alle drei untersuchten Generatoren zusammengestellt. Dabei ergaben sich Werte für ^{134}Cs zwischen 16 und 72 nCi pro 20 ml und für ^{60}Co zwischen 1,9 und 38,5 nCi pro 20 ml. Die Betrachtung der Abhängigkeit der eluierten ^{134}Cs-Aktivitäten von der Elutionsnummer zeigt für die Generatoren I und II einen innerhalb der Genauigkeit der Aktivitätsbestimmung von 1 % konstanten Wert (siehe Abb. 7 a, 7 b), während bei Generator III in der Mitte der Elutionsperiode ein deutlicher Anstieg der ^{134}Cs-Aktivität zu beobachten ist (siehe Abb. 7 c).

Die eluierten ^{60}Co-Aktivitäten zeigen in Abhängigkeit von der Elutionsnummer für die drei untersuchten Generatoren ebenfalls keinen einheitlichen Verlauf. Gegen Ende der Elutionsperiode deutet sich, wie in den Generatoren II und III beobachtbar, eine Abnahme der Aktivitäten an (siehe Abb. 8 b, 8 c). Da die dem Patienten applizierten ^{99m}Tc-Eluate immer einen gewissen Anteil an radioaktiven Verunreinigungen enthalten, erscheint es sinnvoll, die Aktivität der radioaktiven Verunreinigungen auf 1 mCi ^{99m}Tc zu beziehen (relative Aktitität). Die Ergebnisse sind in den Abbildungen 9 und 10 und in Tabelle 6 dargestellt. Die in diesen Abbildungen

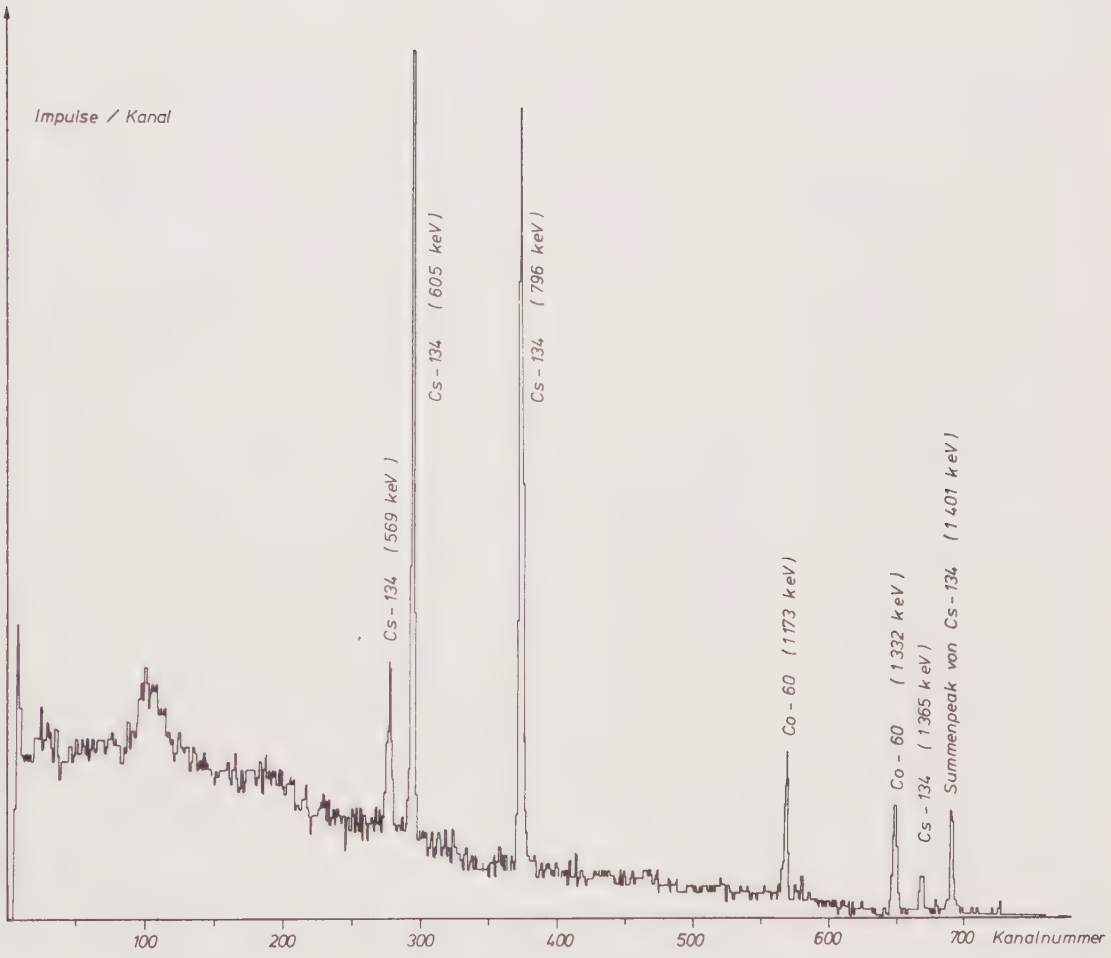

ABB 6 γ - SPEKTRUM EINES ^{99m}Tc - ELUATES 35 TAGE NACH ELUTION DES GENERATORS

Generator-Nummer	Radioaktive Verunreinigung (Fehlerabweichung)	Elutionsnummer									
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
I (25 674)	^{134}Cs	56,13 ± 1,32	38,83 ± 0,79	37,55 ± 1,03	39,70 ± 0,85	39,35 ± 1,30	40,43 ± 0,97	37,35 ± 1,58	35,78 ± 0,42		
	^{60}Co	25,50 ± 1,55	38,48 ± 0,39	13,90 ± 1,26		13,40 ± 1,47	17,20 ± 1,14	19,20 ± 1,22	14,25 ± 1,13		
II (9774)	^{134}Cs	19,08 ± 1,11	18,95 ± 0,61	17,30 ± 1,12	16,43 ± 0,59	18,30 ± 1,25	21,25 ± 0,97	21,00 ± 1,08	21,30 ± 1,56	18,75 ± 0,57	17,75 ± 0,37
	^{60}Co	5,90 ± 0,73	8,25 ± 0,89	7,25 ± 0,62	5,80 ± 0,38	5,43 ± 0,52	5,65 ± 0,92	5,20 ± 1,02	4,50 ± 1,23	4,13 ± 0,95	3,58 ± 0,74
III (30 774)	^{134}Cs	24,00 ± 1,01	38,68 ± 1,37	49,93 ± 1,25	60,58 ± 1,33	70,03 ± 2,10	71,75 ± 1,16	59,03 ± 1,65	52,35 ± 0,84	51,60 ± 0,81	47,88 ± 1,02
	^{60}Co	5,85 ± 0,35	7,15 ± 0,64	6,10 ± 0,14	4,35 ± 0,35	4,15 ± 0,07	2,95 ± 0,07	2,00 ± 0,42	2,10 ± 0,28	2,05 ± 0,21	1,89 ± 0,13

Tabelle 5: Aktivitäten der radioaktiven Verunreinigungen im Fluat (nCi/20 ml) der drei Generatoren

Generator-Nummer	Radioaktive Verunreinigung (Fehlerabweichung)	Elutionsnummer									
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
I (25 694)	^{134}Cs	0,208 ± 0,043	0,199 ± 0,004	0,250 ± 0,007	0,346 ± 0,007	0,463 ± 0,016	0,898 ± 0,021	1,246 ± 0,053	1,491 ± 0,018		
	^{60}Co	0,095 ± 0,006	0,197 ± 0,002	0,093 ± 0,008		0,158 ± 0,017	0,383 ± 0,026	**0,641** ± 0,041	0,594 ± 0,048		
II (9774)	^{134}Cs	0,072 ± 0,004	0,100 ± 0,003	0,115 ± 0,008	0,143 ± 0,005	0,205 ± 0,013	0,484 ± 0,021	0,600 ± 0,031	0,851 ± 0,063	1,040 ± 0,031	1,051 ± 0,024
	^{60}Co	0,022 ± 0,003	0,043 ± 0,004	0,048 ± 0,004	0,050 ± 0,003	0,062 ± 0,006	0,129 ± 0,021	0,148 ± 0,029	0,181 ± 0,049	0,229 ± 0,053	0,238 ± 0,049
III (30 774)	^{134}Cs	0,097 ± 0,004	0,198 ± 0,007	0,333 ± 0,008	0,526 ± 0,012	0,805 ± 0,023	1,668 ± 0,025	1,968 ± 0,056	2,094 ± 0,033	2,865 ± 0,044	**3,295** ± 0,060
	^{60}Co	0,021 ± 0,001	0,037 ± 0,004	0,040 ± 0,002	0,038 ± 0,002	0,048 ± 0,001	0,069 ± 0,001	0,066 ± 0,013	0,085 ± 0,013	0,106 ± 0,026	0,130 ± 0,010

Tabelle 6: Relative Aktivität der radioaktiven Verunreinigungen (nCi/mCi 99 m Tc)

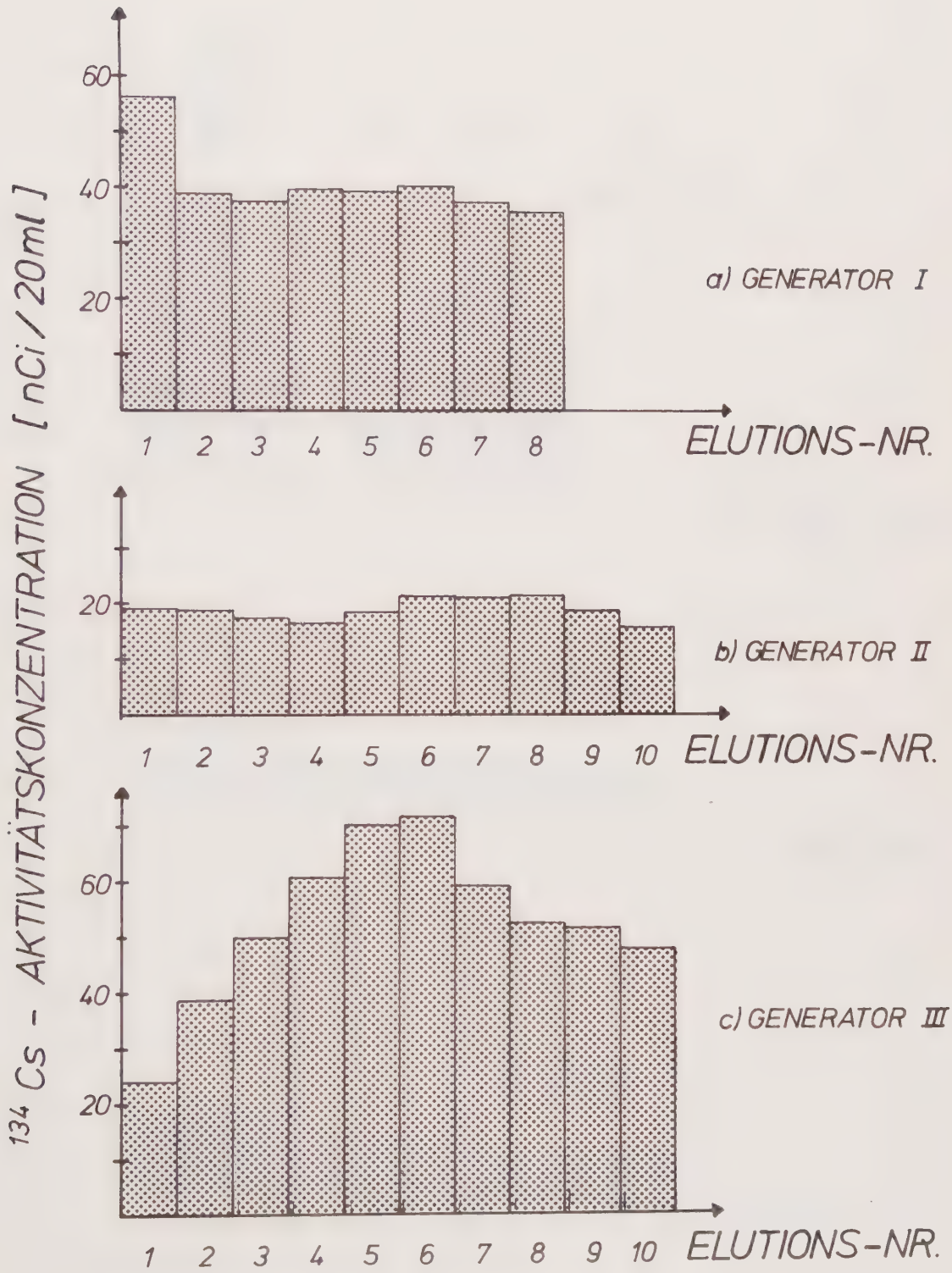

ABB. 7 ^{134}Cs - AKTIVITÄTSKONZENTRATION IM ELUAT

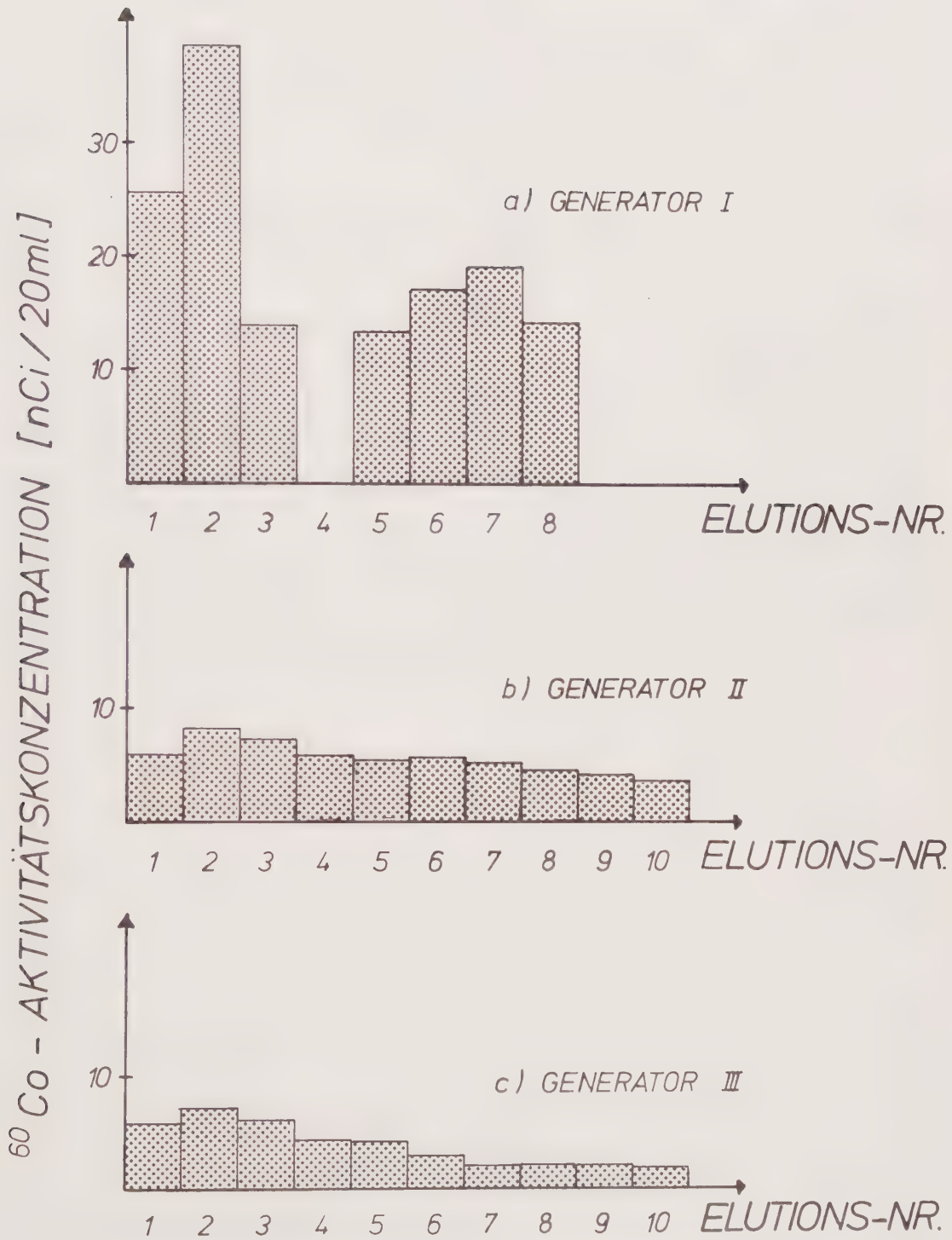

ABB. 8 ^{60}Co - AKTIVITÄTSKONZENTRATION IM ELUAT

ersichtliche Zunahme der relativen Aktivität der radioaktiven Verunreinigungen gegen Ende der Elutionsperioden ist durch die durch den Zerfall von ^{99}Mo bedingte geringere Tc-Aktivitätskonzentration zu erklären. Um die Höchstwerte der zusätzlichen Strahlenexposition durch die radioaktiven Verunreinigungen abschätzen zu können, erscheint es notwendig, die Maximalwerte der relativen Aktivitäten (maximale relative Aktivität) von ^{134}Cs und ^{60}Co heranzuziehen. Sie sind in Tabelle 6 besonders gekennzeichnet.

4.3 Ermittlung der zusätzlichen Strahlenexposition durch radioaktive Verunreinigungen

Die Energiedosis durch radioaktive Verunreinigungen ist in Relation zu den Energiedosen von ^{99m}Tc zu sehen. In Tabelle 7 sind für verschiedene Organe die Werte der relativen Energiedosis (mrd/mCi bzw. mrd/nCi) nach KAUL et al (1973 a) und KAUL et al (1973 b) für die Radionuklide ^{99m}Tc, ^{134}Cs und ^{60}Co zusammengestellt. Unter Berücksichtigung der maximalen relativen Aktivitäten der radioaktiven Verunreinigungen ergeben sich maximale zusätzliche Energiedosen in mrd pro appliziertem mCi ^{99m}Tc für die in Tabelle 7 erwähnten Organe (siehe Tab. 8). Unter maximaler zusätzlicher Energiedosis wird diejenige Energiedosis pro mCi appliziertem ^{99m}Tc verstanden, die aus der Kontamination von Eluaten unter Berücksichtigung der Werte der jeweiligen maximalen relativen Aktivitäten resultiert.

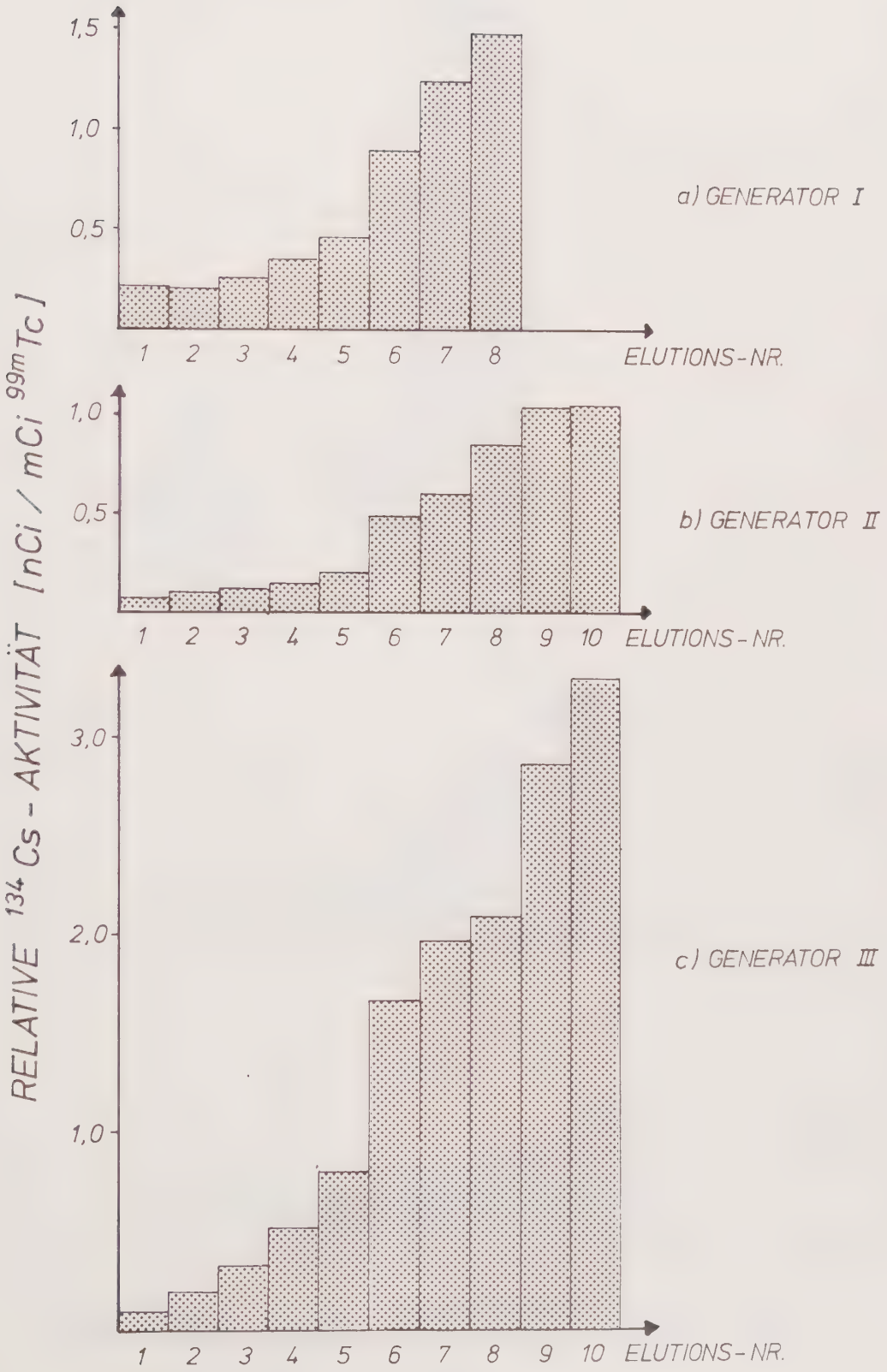

ABB. 9 RELATIVE AKTIVITÄT VON ^{134}Cs

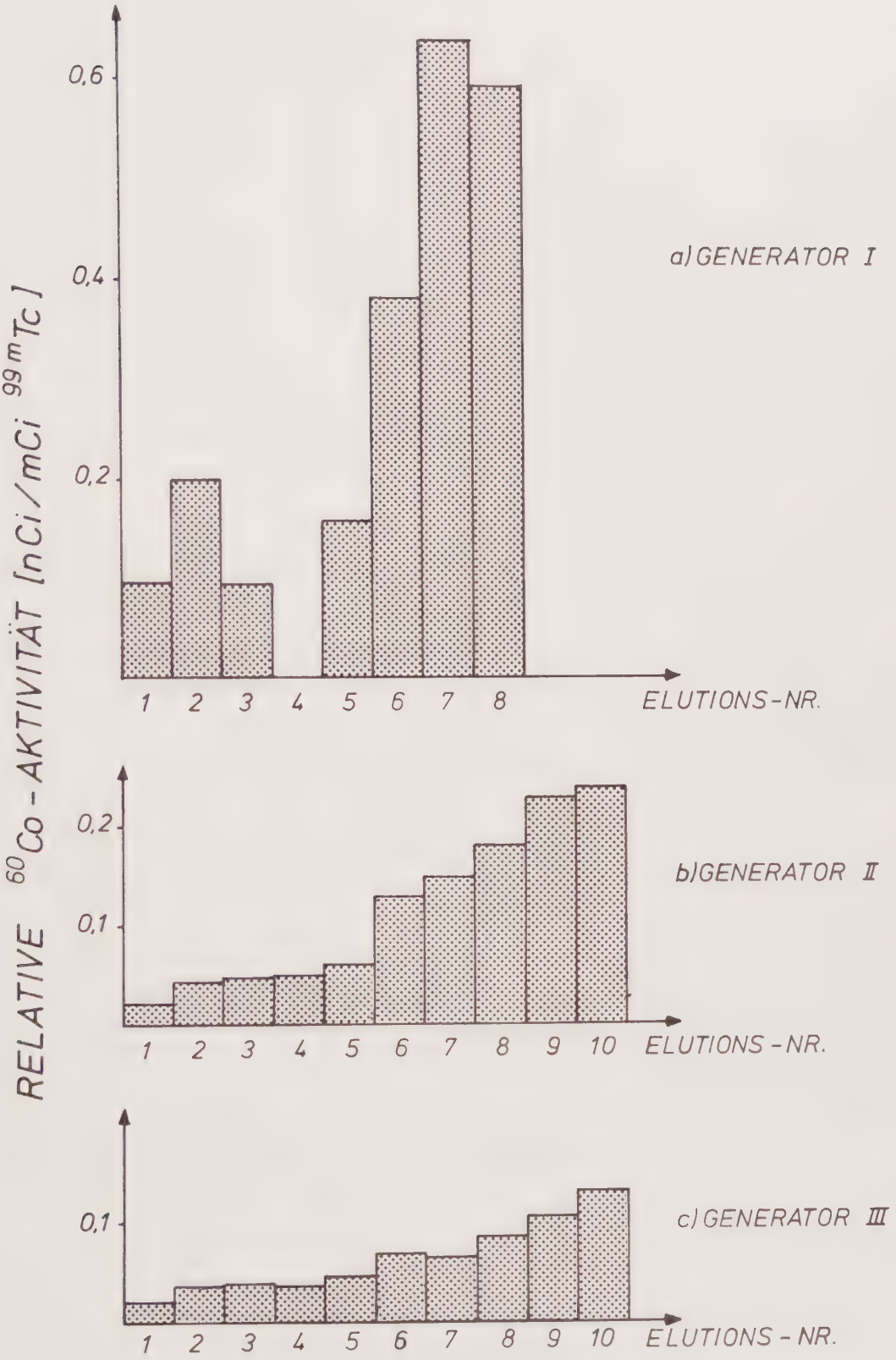

ABB.10 RELATIVE AKTIVITÄT VON ^{60}Co

Organ	Relative Energiedosis		
	99 m Tc [mrd/mCi]	134 Cs [mrd/nCi]	60 Co [mrd/nCi]
Leber	17	0,110	0,012
Gonaden	19	0,062	0,012
Niere	17	0,064	0,010
Milz	18	0,089	0,009
Skelett	18	0,036	0,008
Lunge	15	0,040	0,010

Tabelle 7: Relative Energiedosis in verschiedenen Organen

Radionuklid	134 Cs		60 Co	
maximale relative Aktivität	3,3 nCi/mCi 99 m Tc		0,64 nCi/mCi 99 m Tc	
Organ	max. relative Energiedosis [mrd/mCi 99 m Tc]	zusätzl. Energiedosis bezogen auf 1 mCi appliziertes 99 m Tc	max. relative Energiedosis [mrd/mCi 99 m Tc]	zusätzl. Energiedosis bezogen auf 1 mCi appliziertes 99 m Tc
Leber	0,36	2,1%	0,008	0,05%
Gonaden	0,21	1,1%	0,008	0,04%
Nieren	0,21	1,2%	0,006	0,04%
Milz	0,29	1,6%	0,006	0,03%
Skelett	0,12	0,7%	0,005	0,03%
Lunge	0,13	0,9%	0,006	0,04%

Tabelle 8: Maximale relative und zusätzliche Energiedosis in verschiedenen Organen

4.4 Fehlerbetrachtung

Zur Abschätzung des Gesamtfehlers bei der Aktivitätsbestimmung durch die radioaktiven Verunreinigungen sind sowohl Fehler bei der Probenaufbereitung als auch bei der Messung der Proben zu berücksichtigen. Dieses wird im folgenden diskutiert:

1. Fehler bei der Probenaufbereitung.
   Der beim Pipettieren der Proben auftretende relative Fehler $f_{P,\ Pr}$ beträgt $\pm 0{,}7$ %.

2. Fehler bei der Messung der Proben.
   Ein Meßgeometriefehler erübrigt sich, da die Probenmessung immer unter konstanten geometrischen Bedingungen erfolgt.

   Als prozentualer Meßplatz-Fehler f_{MP} ergab sich über einen Zeitraum von 3 Monaten aus der arbeitstäglichen Ermittlung der Maxima der Photopeaks von ^{22}Na und ^{60}Co im Impulshöhenspektrum der Wert von $\pm 0{,}1$ %. Unter Berücksichtigung des statistischen Fehlers der Probenmessung $f_{st.Pr.}$ gilt für die Abschätzung des relativen Gesamtfehlers der Probenmessung:

$$f_{M,\ Pr} = \pm\sqrt{f^2_{P,\ Pr} + f^2_{MP} + f^2_{st.\ Pr.}} \qquad (11)$$

   Da die Aktivitätsbestimmung der radioaktiven Verunreinigungen über das Ansprechvermögen des Ge(Li)-Detektors erfolgte, sind weitere Fehler zu berücksichtigen.

3. Fehler bei der $\varepsilon(E_\gamma)$-Bestimmung.
   Dieser Fehler resultiert aus dem mittleren Fehler der Aktivitäten der Kalibrierlösungen $f_{A,\ Kal}$, dem Fehler bei der Messung der Kalibrierlösungen $f_{M,\ Kal}$ und dem Fehler $f_{\varepsilon(E_\gamma)}$ bei der Interpolation der $\varepsilon(E_\gamma)$-Ausgleichskurve für beliebige Energien E_γ. Hierfür gilt:

$$f_{M,\ Kal} = \pm\sqrt{f^2_{MP} + f^2_{A,\ Kal} + f^2_{P,\ Kal} + f^2_{st.Kal} + f^2_{\varepsilon(E_\gamma)}} \qquad (12)$$

   Darin bedeuten:

   $f_{M,\ Kal}$: relative Fehler der Messung der Kalibrierlösungen
   f_{MP}: relativer Fehler des Meßplatzes
   $f_{A,\ Kal}$: mittlerer Fehler der Aktivitäten der Kalibrierlösungen
   $f_{P,\ Kal}$: relative Pipettierfehler der Kalibrierlösungen
   $f_{st.\ Kal}$: statistischer Fehler der Messung der Kalibrierlösungen
   $f_{\varepsilon(E_\gamma)}$: relative Fehler bei der Interpolation der $\varepsilon(E_\gamma)$-Ausgleichskurve

In den Gesamtfehler f_{Ges} der Aktivitätsbestimmung radioaktiver Verunreinigungen gehen damit folgende Fehler ein: der mittlere Fehler der Aktivitäten der Kalibrierlösungen $f_{A,\,Kal}$, der relative Fehler der Messung der Kalibrierlösungen $f_{M,\,Kal}$, der relative Fehler bei der Interpolation der $\varepsilon(E_\gamma)$-Ausgleichskurve und der relative Fehler der Probenmessung $f_{M,\,Pr}$. Damit gilt:

$$f_{Ges} = \pm\sqrt{f^2_{A,\,Kal} + f^2_{M,\,Kal} + f^2_{\varepsilon(E_\gamma)} + f^2_{M,\,Pr}} \qquad (13)$$

Mit Gleichung (11) und (12) folgt unter Voraussetzung, daß der Meßplatzfehler f_{MP} und der Pipettierfehler f_P bei Kalibrierung und Probenaufbereitung bzw. Probenmessung identisch sind:

$$f_{Ges} = \pm\sqrt{f^2_{A,\,Kal} + 2f^2_{MP} + 2f^2_{P} + f^2_{st.\,Kal} + f^2_{st.\,Pr.} + f^2_{\varepsilon(E_\gamma)}} \qquad (14)$$

In Tabelle 9 sind die Einzelfehler und die für die Messung der radioaktiven Verunreinigungen ^{134}Cs und ^{60}Co resultierenden relativen Gesamtfehler zusammengestellt.

RN	f_{MP}	f_P	$f_{st.Kal}$	$f_{st.Pr}$	$f_{\varepsilon(E_\gamma)}$	$f_{A,\,Kal}$	f_{Ges}
^{134}Cs	0,1 %	0,7 %	1,2 %	1,2 %	3,3 %	1,1 %	4 %
^{60}Co	0,1 %	0,7 %	1,2 %	4,1 %	3,3 %	1,1 %	6 %

Tab. 9: Einzelfehler und Gesamtfehler bei der Bestimmung der Aktivitäten der radioaktiven Verunreinigungen

5. Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse

In der vorliegenden Arbeit wurden drei ^{99}Mo-^{99m}Tc-Generatoren eines Herstellers auf radioaktive Verunreinigungen untersucht. Unter den Bedingungen der klinischen Routine wurden arbeitstäglich von den Eluaten ein Aliquot von 1 ml γ-spektrometrisch analysiert, die radioaktiven Verunreinigungen identifiziert und deren Aktivitäten bestimmt. Dabei konnten als längerlebige (Halbwertzeit ≥ 10 Tage) radioaktive Verunreinigungen ^{134}Cs und ^{60}Co gefunden werden. Die Aktivitäten im Eluat von 20 ml betrugen maximal 72 nCi für ^{134}Cs und 2 nCi für ^{60}Co. Bezogen auf 1 mCi appliziertes ^{99m}Tc ergab sich hieraus als maximale relative Aktivität 3,3 nCi ^{134}Cs pro mCi ^{99m}Tc bzw. 0,64 nCi ^{60}Co pro mCi ^{99m}Tc. Die daraus resultierende zusätzliche Energiedosis nach ^{99m}Tc Applikation kann bei ^{134}Cs bis zu 2 % (für das Organ Leber), die zusätzliche Energiedosis der radioaktiven Verunreinigung ^{60}Co bis zu 0,05 % betragen. Eine eindeutige Abhängigkeit der Aktivität der radioaktiven Verunreinigungen von der Elutionsnummer konnte weder beim ^{60}Co noch beim ^{134}Cs beobachtet werden. Auch spätere stichprobenartige Kontrolluntersuchungen an ^{99m}Tc-Eluaten von Generatoren im klinischen Routineeinsatz bestätigen die mitgeteilten Ergebnisse, ließen jedoch erkennen, daß zunehmend mit einer geringeren Kontamination zu rechnen ist.

^{134}Cs als radioaktive Verunreinigung wurde auch in früheren Untersuchungen vielfach nachgewiesen (MÜLLER et al (1971); PODOLAK (1972); MEINHOLD et al (1973); CONSTANT et al (1973); HERZBERG et al (1974); SORANTIN et al (1974)), das gleiche gilt für das gefundene ^{60}Co in Arbeiten von MÜLLER et al (1971) und PODOLAK (1972). Als andere radioaktive Verunreinigungen konnten in Eluaten mehrfach ^{131}J (SMITH (1964); MÜLLER et al (1971); BOYD (1973); CONSTANT et al (1973); COLOMBETTI et al (1973); SORANTIN et al (1974)); ^{86}Rb (MÜLLER et al (1971); PODOLAK (1972); CONSTANT et al (1973); HERZBERG et al (1974)); ^{103}Ru (SMITH (1964); BOYD (1973); CONSTANT et al (1973); COLOMBETTI et al (1973); SORANTIN et al (1974)); ^{110m}Ag (MÜLLER et al (1971); MEINHOLD et al (1973); HERZBERG et al (1974)); ^{124}Sb (WOOD et al (1971); SORANTIN et al (1974)) und ^{132}J BOYD (1973); BRINER et al (1974)) (siehe Tab. 2) gefunden werden.

In allen Untersuchungen lagen die Aktivitäten der radioaktiven Verunreinigungen unterhalb des von der AEC zugelassenen Wertes von 0,01 % der Technetium-Aktivität (loc. cit. CROSBY (1969)). Die in früheren Arbeiten häufiger beobachteten Molybdän-Durchbrüche konnten in der vorliegenden Arbeit nicht nachgewiesen werden. Desgleichen erlaubte die durchgeführte γ-spektrometische Untersuchung der ^{99m}Tc-Eluate keine Angabe über radioaktive Verunreinigungen α-strahlender

Radionuklide. In bisherigen Untersuchungen konnte diese Beobachtung von SORANTIN et al (1974) ebenfalls bestätigt werden. Dagegen wird in der Arbeit von CONSTANT et al (1973) über die Anwesenheit der radioaktiven Verunreinigungen ^{241}Am und ^{239}Pu berichtet. Desgleichen hat BOYD (1973) in seinen Untersuchungen in Spaltgeneratoren eine α-Aktivität gefunden, die <1 nCi pro 10 mCi ^{99m}Tc ist.

Die in der vorliegenden Arbeit ermittelten zusätzlichen Strahlenexepositionen durch die radioaktiven Verunreinigungen ^{60}Co (maximal 0,05 %) und ^{134}Cs (maximal 2 %) können vernachläßigt werden. Dies gilt auch für die von CROSBY (1969) angegebene Gesamtkörper- bzw. Schilddrüsen-Dosis durch die radioaktive Verunreinigung ^{186}Re sowie für die von SORANTIN et al (1974) angegebene zusätzliche Dosis durch die Radionuklide ^{131}J und ^{103}Ru. Lediglich MEINHOLD et al (1973) berichten, daß neben der zu vernachläßigenden Strahlenexposition durch ^{110m}Ag die zusätzliche Energiedosis durch die radioaktive Verunreinigung ^{134}Cs im ungünstigsten Fall bis zu 85 % der applizierten Energiedosis durch ^{99m}Tc betragen kann.

Faßt man die Ergebnisse aller bisher mitgeteilten Untersuchungen über radioaktive Verunreinigungen in ^{99m}Tc-Eluaten zusammen, dann läßt sich verallgemeinernd die Aussage machen, daß die zusätzliche Strahlenexposition aufgrund von radioaktiven Verunreinigungen gegenüber derjenigen durch ^{99m}Tc zu vernachläßigen ist. Aus dieser Sicht resultiert keine Einschränkung für die Verwendung ^{99m}Tc-markierter Radiopharmaka im Bereich der Nuklearmedizinischen Routinediagnostik.

6. Literatur

BOYD, R. E. : Recent Developments in Generators of ^{99m}Tc. IAEA 1973, 3–26

BRINER, W. H., HARRIS, C. C.: Radionuclidic Contamination of Eluates from Fisson-Product Mo-Tc-Generators, J. Nucl. Med. 15 (6) 466, 1974

COLOMBETTI, L. G. HUSAK, V., DVORAK, V.,: Study of the Purity of ^{99m}Tc Sublimed from Fission ^{99}Mo and the Radiation Dose from the impurities. Int. J. of Applied Radiation and Isotopes 1974, Vol. 25, 35–41

CONSTANT, R., FALLAIS, C., CHARLIER, R., BIEVELEZ, P. : Le Generateur ^{99m}Tc: Contrôle de pureté et contrôle de production. IAEA 1973, 27–38

CROSBY, E. H.: Radiochemical Purity of Short-lived ^{99m}Tc from Commercial Supplies. Radiology Vol. 93, 1969

ERDTMANN, W., SOYKA, W.: Die γ-Linien der Radionuklide. Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, Nr. 1003, 1973

HERZBERG, B., KAUL, A., MEINHOLD, H., ROEDLER, H. D.: The additional Radiation Dose in Patients Due to Radioactive Impurities in Radionuclid-Generators. Nuklearmedizin, Ergebnisse in Technik, Klinik und Therapie,11. Jahrestagung der Gesellschaft für Nuklearmedizin, Athen 1974

KAUL, A., ROEDLER, H. D.: Berechnung der Strahlendosis durch inkorporierte radioaktive Stoffe. Atomkernenergie, Bd. 24 (1974) Lfg. 1, 36–42

KAUL, A., OEFF, K., ROEDLER, H. D., VOGELSANG, T.(: Radiopharmaka-biokinetische Daten und Ergebnisse von Neuberechnungen der Strahlendosis. Berlin: Informationsdienst für Nuklearmedizin 1973, 650 pp

KAUL, A., OEFF, K., ROEDLER, H. D., VOGELSANG, T.: Die Strahlenbelastung von Patienten bei der nuklearmedizinischen Anwendung offener radioaktiver Stoffe. Berlin: Informationsdienst für Nuklearmedizin, 2. Aufl. 1973

MEINHOLD, H., HERZBERG, B., KAUL, A., ROEDLER, H. D.: Radioactive Impurities of Nuclide Generators and Estimation of Resulting Absorbed Dose in Man. International Atomic Energy Agency, Wien 1973

MÜLLER, Th., STEINNES, E.: On the purity of eluates from ^{99m}Tc-Generators. Scand. J. Lab. Investigation, 28, 1971, 213

PODOLAK, M.: ^{134}Cs, ^{86}Rb und ^{60}Co in ^{99}Mo-^{99m}Tc-Generator Eluate. J. Nucl. Med. Juni 1972, Vol. 13, 6

ROEDLER, H. D., KAUL, A., BERNER, W., KOEPPE, P., GLAUBITT, D.: Development of an Extended Formalism for Internal Dose Calculation and Practical Application to Serveral Biologically Distributed Radioelements. Assessement of Radioactive Contamination in Man. Proc. Symp. Stockholm, 1971. Vienna: IAEA 1972, 515–541

ROEDLER, H. D.: Strahlenbelastung durch Radiopharmaka-Entwicklung eines mathematischen Dosiskonzepts und Ergebnisse von Neuberechnungen der Energiedosis. Diss. Freie Universität Berlin (1974)

RÖMER. M., GREBE, S. F.: The use of radioisotope generators in nuclear medicine. Kerntechnik 12 (1970), 10, 442

SMITH, E. M.: Properties, Uses, Radiochemical Purity and Calibration of ^{99m}Tc. J. Nucl. Med. 5, 1964, 871–882

SORANTIN, H., STRACHOTINSKY, Ch., KREJSA, P.: Strahlenschutztechnische Überprüfung von ^{99}Mo-^{99m}Tc-Generatoren. Österr. Studiengesellschaft für Atomenergie, Wien 1974

WOOD, D. E., BOWEN, M.: ^{95}Zr and ^{124}Sb in ^{99}Mo-^{99m}Tc-Generators. J. Nucl. Med. 12 (6) 1971, 307–309

LEBENSLAUF

Geburtsdatum:	16. September 1943
Geburtsort:	Steinhöring, Kreis Ebersberg in Oberbayern
Vater:	Willi Hardieck, Offizier, 1944 gefallen
Mutter:	Trudel Hardieck, geb. Wohlbold
Wohnort:	Bad Wiessee, Jägerstraße 29
Ausbildung:	Volksschule in Bad Wiessee von 1950–1955, danach Gymnasium mit Ablegen des Abiturs 1966 an dem Neusprachlichen Johannes Nepomuk Gymnasium in Rohr in Niederbayern; Herbst 1966 Beginn des Medizinstudiums an der Freien Universität Berlin, wo ich 1970 mein Physikum und am 8.3.74 an der gleichen Universität mein Staatsexamen bestanden habe; danach Beginn meiner Medizinalassistentenzeit von zunächst Juni bis Oktober 1974 auf der Nuklearmedizinischen Abteilung des Klinikums Steglitz Berlin, von Januar bis Mai 1975 auf der Chirurgischen Abteilung des Städtischen Krankenhauses für Chronisch- und Alterskranke Berlin-Charlottenburg und abschließend von Juni bis zu meiner Approbation im Oktober 1975 auf der Inneren Abteilung des Städtischen Behring-Krankenhauses in Berlin. Frühjahr 1974 Beginn der Anfertigung meiner Dissertationsarbeit an der Klinik für Radiologie, Nuklearmedizin und Physikalische Therapie im Klinikum Steglitz.

Volker Hardieck

Für die vielen Anregungen und Ratschläge bei der Anfertigung dieser Arbeit, sowie für die ständige Hilfsbereitschaft und Unterstützung in allen Fragen danke ich Herrn Prof. Dr. Alexander Kaul ganz besonders herzlich.

Desgleichen gilt mein aufrichtiger Dank allen Mitarbeitern in der Abteilung für Physik/ Strahlenschutz (Biophysik) für ihre wertvolle Hilfe, insbesondere Frau Kegel, Fräulein Witzke, Herrn Dr. Herzberg, Herrn Loose und Herrn J. Hardieck.

Herstellung und Druck: Verlag H. Hoffmann, Bergengruenstraße 26 B, 1 Berlin 38, Tel. 801 60 04 — 1976 —